



На правах рукописи

Леонтьев Андрей Владимирович

**Сверхбыстрая динамика фотовозбужденных состояний фталоцианина и
сульфида кадмия при комнатной температуре**

01.04.05 – оптика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Казань – 2017

Работа выполнена в лаборатории Быстропротекающих молекулярных процессов Федерального государственного бюджетного учреждения науки Казанский физико-технический институт им. Е. К. Завойского Казанского научного центра Российской академии наук (КФТИ КазНЦ РАН)

Научный руководитель:

Лобков Владимир Сергеевич, кандидат физико-математических наук, ведущий научный сотрудник, заведующий лабораторией Быстропротекающих молекулярных процессов КФТИ КазНЦ РАН, г. Казань.

Официальные оппоненты:

Андрианов Сергей Николаевич, доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник Института перспективных исследований ГНБУ «Академия наук Республики Татарстан», г. Казань.

Юсупов Роман Валерьевич, кандидат физико-математических наук, доцент, старший научный сотрудник ФГАОУ ВО «Казанский (Приволжский) федеральный университет», г. Казань.

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Казанский государственный энергетический университет», г. Казань.

Защита состоится **7 сентября 2017 г. в 14 ч. 00 мин.** на заседании диссертационного совета Д.212.081.07 при ФГАОУ ВО «Казанский (Приволжский) федеральный университет» по адресу: 420008, г. Казань, ул. Кремлевская, д. 16а, **ауд. 110** Института физики.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке имени Н.И. Лобачевского Казанского (Приволжского) федерального университета (г.Казань, ул. Кремлевская, д. 35). Электронная версия размещена на официальных сайтах ВАК при Министерстве образования и науки РФ (vak2.ed.gov.ru) и Казанского (Приволжского) федерального университета kpfu.ru.

Автореферат разослан _____

Ученый секретарь
диссертационного совета:
д.ф.-м.н., профессор



Камалова Д. И.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования

В последние годы в научном сообществе возрастает интерес к проблеме создания оптического компьютера, осуществляющего сверхбыстрые логические операции, основанные на различных оптических нелинейных процессах. Фундаментальным компонентом электронных вычислительных систем является управляемый электронный переключатель (транзистор). Реализация полностью оптической системы обработки информации при одновременном сохранении существующей концептуальной логической схемотехники требует создания аналога транзистора – оптического вентиля, в котором реализуется переключение света светом. В качестве рабочих средств таких устройств применяются твердотельные материалы, характеризующиеся высоким значением нелинейной восприимчивости третьего порядка ($\sim 10^{-13}$ см²/Вт и выше), определяющей контраст оптического переключения. Важными характеристиками этих сред являются времена включения и восстановления статического состояния. В связи с этим исследование сверхбыстрой динамики материалов, перспективных для применений в области систем оптической обработки информации, является **актуальной задачей**.

Одним из направлений развития систем оптических вычислений является осуществление логических операций на основе явления четырехволнового смешения¹. Так, при температуре жидкого гелия с использованием молекул красителя, диспергированных в полимерной пленке, в качестве рабочей среды была экспериментально реализована логическая операция побитного умножения². Преимуществом схемы, основанной на явлении четырехволнового смешения, является то, что быстродействие в этом режиме ограничивается временем оптической декогеренции, которое, в особенности при высоких температурах, может быть существенно короче радиационного времени жизни возбужденных состояний. Однако с точки зрения практического использования подобных устройств **актуальной проблемой** является перевод режима их работы в область более высоких, в идеале, комнатных температур.

¹ Fresch B., Cipolloni M., Yan T.M., Collini E., Levine R. D., Remacle F. Parallel and Multivalued Logic by the Two-Dimensional Photon-Echo Response of a Rhodamine–DNA Complex // The journal of physical chemistry letters. 2015. V. 6. №. 9. P. 1714-1718.

² Rebane A., Drobizhev M., Sigel Ch., Ross W., Gallus J. Ultrafast optical processing with photon echoes // Journal of Luminescence. 1999. V. 83-84. P. 325-333.

С другой стороны, **перспективным** направлением исследований является поиск и создание сред, представляющих собой полимерную матрицу с внедренными органическими хромофорными молекулами и полупроводниковыми наночастицами. Такие преимущества полимерной матрицы, как технологичность изготовления, устойчивость к агрессивным средам и ударным нагрузкам и т.д., в сочетании с возможностью управления оптическими свойствами активаторов за счет изменения их физико-химических характеристик, делают их **перспективными материалами** для практических применений в различных областях науки и техники. Примерами таких сред являются органические полимеры с внедренными молекулами красителей с делокализованной π -электронной системой, таких как фталоцианины, а также нанокомпозиты на основе нанокристаллитов полупроводников группы II-VI (чаще всего сульфид кадмия (CdS), селенид кадмия (CdSe) и их смешанные кристаллы) в полимерной матрице. Это связано главным образом с высокими значениями нелинейной восприимчивости, короткими временами отклика на оптическое воздействие и возможностью перестройки рабочих длин волн в видимой области путем изменения структуры лигандов во фталоцианинах и управления размером нанокристаллитов в полупроводниковых нанокомпозитах.

На основе нанокомпозитов CdS и CdSe^{1, 2} уже экспериментально реализованы модели оптических переключателей, однако сложно оценить их быстродействие, поскольку существует значительная неопределенность в значении характерного времени жизни возбужденного состояния в зависимости от параметров кристаллов и условий возбуждения. Кроме того, существуют объективные трудности изготовления прозрачных образцов на основе полимеров с высокой концентрацией равномерно распределенных в матрице наночастиц и молекул без их агломерации. В то же время низкая концентрация излучающих частиц и необходимость использования нелинейных спектроскопических методик в субнаносекундном диапазоне времен создает экспериментальные сложности при исследовании сверхбыстрой динамики фотовозбуждений в таких объектах. Наконец, возникновение каналов обмена

¹ Piccione B., Cho C. H., Van Vugt L. K., Agarwal R. All-optical active switching in individual semiconductor nanowires // Nature nanotechnology. 2012. V. 7. №. 10. P. 640-645.

² Valligatla S., Haldar K. K., Patra A., Desai N. R. Nonlinear optical switching and optical limiting in colloidal CdSe quantum dots investigated by nanosecond Z-scan measurement // Optics & Laser Technology. 2016. V. 84. P. 87-93.

энергией между самими наночастицами и со средой затрудняет интерпретацию наблюдаемых зависимостей. Поэтому, чтобы проследить изменения динамики фотовозбуждений при переходе от монокристаллических образцов к наночастицам в жидкой или полимерной среде, необходимо проведение исследований в объемных образцах. В связи с этим, с точки зрения выявления механизмов и построения моделей фотоиндуцированных процессов в таких материалах изучение спектрально-кинетических свойств кристалла CdS со сверхвысоким временным разрешением при возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами также является **актуальной задачей**.

Цель и задачи работы

Цель диссертационной работы — экспериментальное исследование сверхбыстрой динамики фотовозбужденных состояний полимерных пленок, допированных фталоцианином, и кристалла сульфида кадмия при комнатной температуре для приложений оптической обработки информации.

Для достижения поставленной цели были сформулированы следующие **задачи**.

1. Создать на основе фемтосекундного спектрометрического комплекса Казанского физико-технического института (КФТИ) экспериментальную установку, позволяющую исследовать сверхбыструю релаксацию возбуждений методами «возбуждение-зондирование», ап-конверсии и четырехволнового смешения в конденсированной фазе.
2. Исследовать динамику фазовой релаксации и населенности возбужденного состояния в пленке поливинилбутирала, допированной фталоцианином, методами спектроскопии сверхвысокого временного разрешения при комнатной температуре.
3. Исследовать динамику и механизм релаксации фотовозбужденных носителей заряда в кристалле CdS методами спектроскопии сверхвысокого временного разрешения при комнатной температуре.

Положения, выносимые на защиту

1. Пленки поливинилбутирала, допированные фталоцианином, могут быть использованы для реализации сверхбыстрых операций логического умножения в режиме четырехволнового смешения эхо-сигналов при комнатных температурах.
2. Сверхбыстрая динамика носителей заряда в монокристалле CdS в условиях возбуждения фемтосекундными лазерными импульсами с центральной длиной волны 800 нм определяется процессами спонтанной

рекомбинации фотовозбужденных носителей заряда и их захвата глубокими ловушками.

3. Характерное время внутризонной релаксации горячих носителей в монокристалле CdS при комнатной температуре обратимым образом изменяется с сотен фемтосекунд до единиц пикосекунд при превышении интенсивности возбуждающего излучения порогового значения в 100 ГВт/см^2 .

Научная новизна работы

1. Методом вырожденного четырехволнового смешения **впервые** измерено время фазовой релаксации фталоцианина HW-1009 в пленке поливинилбутирала при комнатной температуре.
2. **Впервые** на основе вырожденного четырехволнового смешения оптических сигналов при комнатной температуре реализована логическая операция умножения.
3. **Впервые** определено характерное время захвата фотовозбужденных носителей заряда в монокристалле сульфида кадмия ловушками при возбуждении фемтосекундными импульсами с центральной длиной волны 800 нм.

Практическая значимость работы

Полученные в данной работе параметры динамики фотовозбуждений в поливинилбутирале, допированном фталоцианином, при температурах 77К и 290К могут быть использованы для определения параметров электрон-фононного взаимодействия в этой системе. Показано, что при практической реализации оптических вычислительных устройств на основе вырожденного четырехволнового смешения в хромофорных полимерных пленках криогенные температуры не являются необходимым условием.

Измеренные в работе параметры релаксации электронной подсистемы сульфида кадмия необходимы для моделирования эволюции возбужденных состояний, возникающих в рабочих средах под действием фемтосекундных лазерных импульсов, при разработке современных устройств квантовой электроники и оптической обработки информации: оптически управляемых затворов, насыщающихся поглотителей, сверхбыстрых преобразователей длины волны и т. д .

Методы исследования

В диссертационной работе применялся ряд методик спектроскопии со сверхвысоким временным разрешением (четырёхволнового смешения и фотонного эха, ап-конверсии, наведенных изменения коэффициента поглощения, показателя преломления, решеток населенности).

Достоверность и обоснованность результатов обеспечены комплексным характером выполненных экспериментальных исследований, многократной воспроизводимостью и непротиворечивостью результатов, полученных различными методами, совпадением результатов контрольных экспериментов, с результатами теоретических расчетов и модельных экспериментов, а также с установленными фактами, опубликованными в научной литературе.

Апробация работы

Основные результаты работы докладывались и обсуждались на следующих научных конференциях и семинарах: XVII Международная конференция молодых ученых и специалистов **Оптика – 2009** (Санкт-Петербург, 2009 г.); XII, XIII, XVIII, XIX Международная молодежная научная школа **Когерентная оптика и оптическая спектроскопия** (Казань, 2009, 2010, 2014, 2015 гг.); IX, X **Международный Симпозиум по фотонному эхо и когерентной спектроскопии** (Казань, 2009г., Йошкар-Ола, 2013 г.); Международная конференция **“ICONO/LAT”** (Казань, 2010 г., Москва, 2013 г.), на научных семинарах КФТИ КазНЦ РАН. Работа выполнена в рамках госконтракта с Минобрнауки № 14.Z50.31.0023, частично поддержана грантами РФФИ № 15-03-02544_А, 17-02-00701_А.

Публикации

Основные результаты диссертации опубликованы в 8 научных статьях в ведущих рецензируемых журналах [A1-A8], включенных в перечень ВАК и в тезисах всероссийских и международных конференций [A9-A12].

Личный вклад автора

Представленные в данной диссертации экспериментальные данные были получены в лаборатории быстропротекающих молекулярных процессов Казанского физико-технического института КазНЦ РАН. Личный вклад автора заключается: в участии в постановке цели и задач исследования, планировании экспериментов; в участии в создании экспериментальной установки

(размещение элементов оптической схемы и юстировка, разработка программно-аппаратной системы регистрации и управления экспериментами); в проведении экспериментов и регистрации экспериментальных данных; в участии в анализе, обсуждении и подготовке к публикации полученных результатов.

Структура и объем работы

Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, заключения, списка сокращений, списка публикаций автора и списка литературы. Общий объем диссертации составляет 131 страницу, включая 61 рисунок и 1 таблицу. Список литературы содержит 134 наименования.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Первая глава посвящена описанию основных идей методов лазерной спектроскопии со сверхвысоким временным разрешением, использованных в работе: методики четырехволнового смешения и фотонного эха, техник регистрации динамики наведенного поглощения и изменения показателя преломления, динамики решеток населенности и динамики фотолюминесценции в схеме ап-конверсии.

Во второй главе описываются принципы работы и параметры лазерной системы фемтосекундного спектрометрического комплекса КФТИ. Модернизированный автором фемтосекундный спектрометрический комплекс КФТИ представляет собой универсальный исследовательский инструмент, позволяющий проводить комплексные исследования динамики релаксации населенностей, фазовой релаксации, процессов диффузии носителей. В таблице 1 приведены параметры генерируемого системой фемтосекундного лазерного излучения, определяющие временное разрешение комплекса порядка 50 фс и диапазон измеряемых времен – от десятков фемтосекунд до сотен микросекунд.

Таблица 1

Длина волны	750÷820 нм
Пиковая интенсивность	2 ТВт/см ²
Длительность импульсов	50 фс
Частота следования	3 000 Гц

Особое внимание уделено программно-аппаратной системе регистрации и управления экспериментами, разработанной автором с учетом особенностей проводимых спектроскопических экспериментов.

В первой части **третьей главы** на основе обзора существующей литературы обсуждается возможность применения полимерных пленок, допированных молекулами красителя, в качестве рабочей среды для построения сверхбыстрых оптических вычислительных устройств. Поскольку спектральная форма сигнала первичного фотонного эха $E_e(\omega)$ определяется спектрами возбуждающих импульсов $E_1(\omega)$ и $E_2(\omega)$: $E_e(\omega) \sim E_1(\omega) \cdot E_2^2(\omega)$, то если устранить некоторые из частотных компонент спектра любого из импульсов путем спектральной фильтрации, эти компоненты исчезнут из спектра отклика эха. Если приписать наличию либо отсутствию сигнала на определенной частоте ω значение «0» или «1», то при анализе спектра отклика эха получится набор результатов побитного умножения, осуществленного независимо для всех ω .

Ширина спектрального интервала, соответствующего одному биту информации, не может быть меньше однородной ширины линии. Поэтому такая схема оптической обработки сигналов на основе фотонного эха была осуществлена ранее только при температуре жидкого гелия. В свете практического использования подобных оптических вычислительных устройств возникает вопрос, можно ли осуществить эту операцию при более высоких температурах, в перспективе, при комнатных? Ответ на этот вопрос зависит от того, насколько сильно при высоких температурах сокращается время необратимой фазовой релаксации T_2 в используемой среде.

В следующем разделе третьей главы, посвященном изложению результатов экспериментов, проведенных автором, приведена зависимость интенсивности дифракции на наведенной решетке населенностей и отклика вырожденного четырехволнового смешения (ЧВС) в пленке поливинилбутираля, допированной фталоцианином HW-1009, от задержки зондирующего импульса (рисунок 1).

Время жизни возбужденного состояния $T_1 = 1100 \pm 30$ пс определено по характерному времени распада наведенной решетки. При анализе формы отклика ЧВС получена оценка $T_2 = 120 \pm 3$ фс при комнатной температуре. Соответствующая оценка однородной ширины линии приблизительно в 5 раз меньше ширины спектра лазерного импульса. Это означает, что операция эхо-процессинга может быть реализована при комнатной температуре, при этом одновременно может обрабатываться не более 5 бит информации.

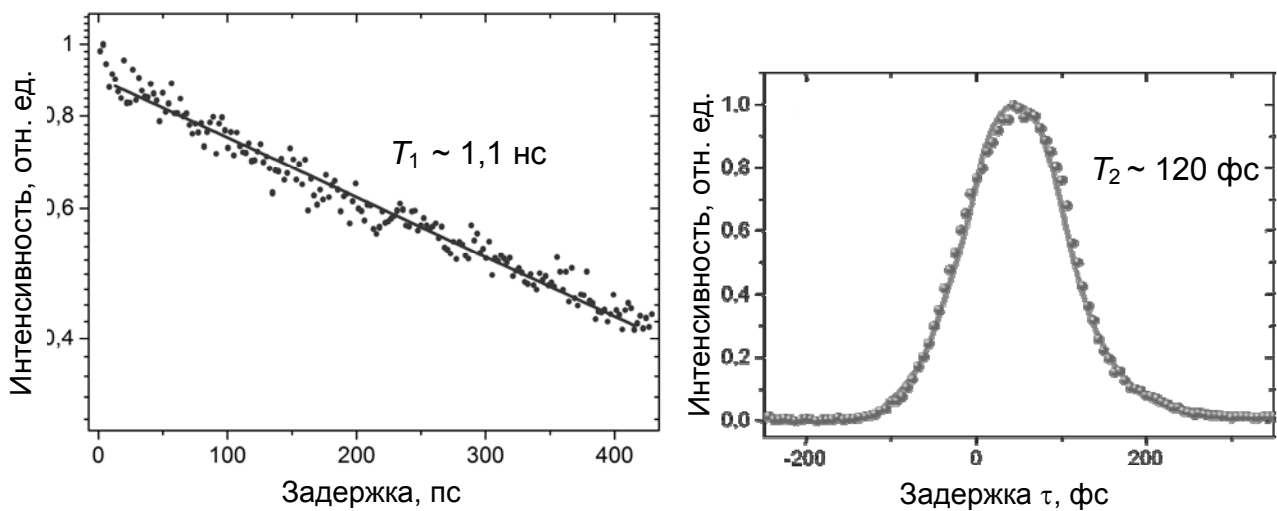


Рисунок 1. (Слева) Спад дифракции на наведенной решетке населенностей в пленке поливинилбутирала, допированной фталоцианином, при комнатной температуре.

(Справа) Динамика сигнала вырожденного четырехволнового смешения. Точки – экспериментальные данные, линия – результат аппроксимации функцией

$$I(\tau) \propto \int_0^\infty dt \int_0^\infty dt' f(t' - t) f(t - \tau) f^*(t' - \tau) \exp[-2(t + t')/T_2],$$
 где $f(t)$ – автокорреляционная функция импульсов возбуждения

В заключение приведен результат экспериментальной реализации операции логического умножения над заданными последовательностями из 3 бит на основе ЧВС при комнатной температуре (рисунок 2) и сделан вывод о принципиальной возможности построения полностью оптического вычислительного устройства на основе явления ЧВС при высоких температурах, включая комнатную.

Четвертая глава посвящена экспериментальному исследованию полупроводникового монокристалла сульфида кадмия методами фемтосекундной лазерной спектроскопии.

В первой части главы на основе обзора литературы обсуждаются перспективы использования материалов на основе CdS в приложениях оптоэлектроники и систем оптической обработки информации. Указывается на широкий разброс опубликованных величин характерных времен релаксации электронной системы и необходимость провести независимые измерения в условиях возбуждения фемтосекундными импульсами, поскольку от скорости

релаксации фотовозбужденных состояний напрямую зависит время восстановления в потенциальном оптическом переключателе.

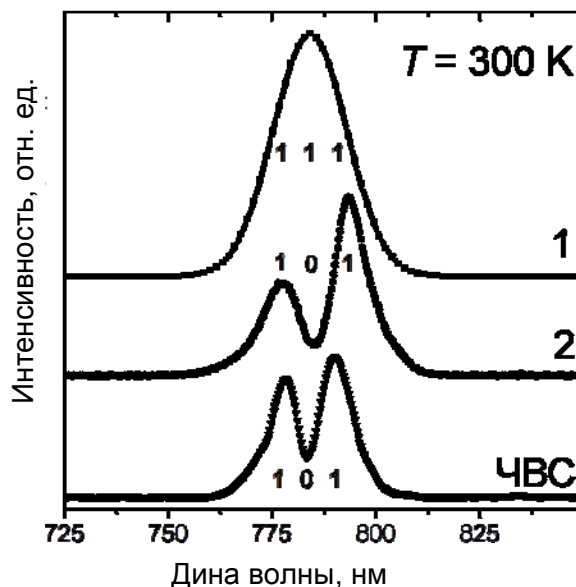


Рисунок 2. Спектры импульсов возбуждения 1 и 2 с закодированными входными последовательностями (1,1,1) и (1,0,1) и отклика вырожденного четырехволнового смешения с результатом побитового умножения (1,0,1)

В следующем разделе четвертой главы обсуждаются результаты проведенных автором экспериментальных исследований процессов фотовозбуждения и релаксации свободных носителей заряда, а также заселения глубоких уровней методом «возбуждение-зондирование» в условиях, когда энергия кванта излучения возбуждения (~ 1.5 эВ) меньше ширины запрещенной зоны кристалла (~ 2.5 эВ). Поскольку изменение коэффициента поглощения (рисунок 3, график слева) определяется динамикой населенности резонансных уровней дефектных центров (глубоких ловушек), а изменение показателя преломления (степени дефокусировки зондирующего пучка) (рисунок 3, график справа) – динамикой населенности нижних подуровней зоны проводимости, удалось достоверно определить характерные времена рекомбинации фотовозбужденных носителей (230 ± 6 пс) и захвата их дефектными центрами (100 ± 20) пс. При этом сами локализованные состояния на дефектных центрах (глубоких ловушках) продолжают существовать в течение времен, существенно превышающих диапазон изменения задержки (> 1 нс).

Следующий раздел посвящен оценке скорости диффузии возбужденных носителей с использованием метода наведенных решеток. Полученное значение коэффициента амбиполярной диффузии $D = 1.5 \pm 0.2 \text{ см}^2/\text{с}$ согласуется со значениями, полученными альтернативными методами. Меньшие значения

коэффициента диффузии могли бы свидетельствовать о значительном количестве дефектов структуры кристаллической решетки, а существенно большие – об экранировании заряженных дефектных центров газом носителей заряда высокой плотности.

В последующем разделе обсуждается появление в кривой спада эффективности дифракции на наведённой решётке участка быстрой релаксации с характерным временем в 4 пс при увеличении интенсивности возбуждения выше порога в 100 ГВт/см^2 (рисунок 4).

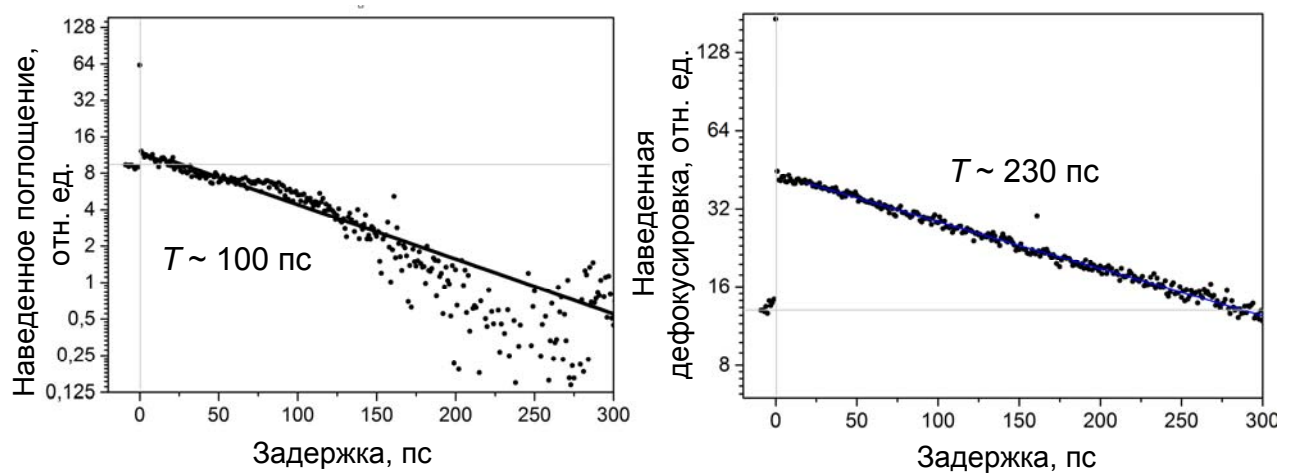


Рисунок 3. Зависимость величины наведённых поглощения (слева) и дефокусировки (справа) от задержки зондирующего импульса в кристалле CdS

Рассмотрен ряд возможных причин появления этой быстрой компоненты спада: дополнительный канал быстрой рекомбинации, увеличение эффективного значения коэффициента диффузии носителей по отношению к измеренному при допороговых интенсивностях возбуждения значению в $1.5 \text{ см}^2/\text{с}$, размывание наведённой решетки вследствие лавинного расширения зоны инверсии населенностей носителей в областях максимумов решетки при вынужденной излучательной рекомбинации. Было показано, что наиболее непротиворечивым и согласующимся с экспериментальными данными является следующий механизм появления быстрой составляющей. При условии, что в окрестности максимумов наведённой решетки плотность носителей превышает порог усиления, свет, излучаемый при рекомбинации, свободно распространяется через зону усиления, и либо покидает образец, либо перепоглощается дальше, в области, где распределение носителей невырождено, тем самым увеличивая локальную плотность носителей.

Такой процесс продолжается, пока поддерживается неравновесная населенность вблизи дна зоны проводимости, т.е. пока продолжается внутризонная релаксация горячих носителей. При этом из анализа прямого измерения длительности вынужденной эмиссии методом ап-конверсии следует, что характерное время охлаждения горячих носителей в условиях, когда интенсивность возбуждения заведомо меньше порогового значения в 100 ГВт/см^2 , не превышает 400 фс, т.е. с ростом плотности горячих носителей их охлаждение замедляется.

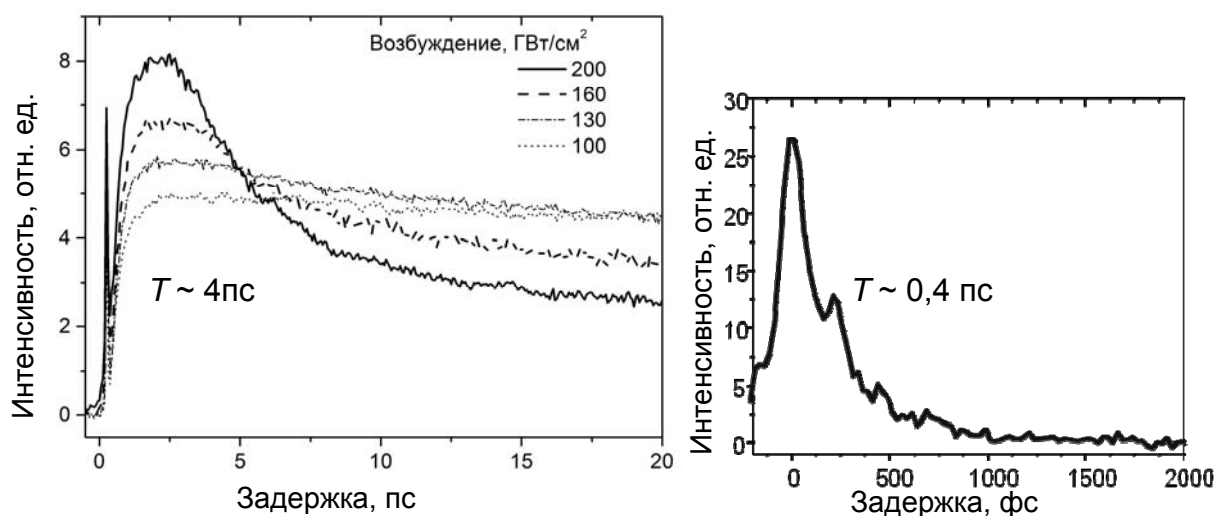


Рисунок 4. (Слева) «Быстрая» составляющая спада эффективности дифракции (интенсивности зондирующего пучка, испытавшего дифракцию) на наведенных решётках населённостей при различных значениях интенсивности возбуждения. (Справа) Временная форма сигнала вынужденной излучательной рекомбинации при интенсивности возбуждения $< 100 \text{ ГВт/см}^2$

Ранее ¹ на основе анализа спектров люминесценции в CdSe, без проведения экспериментов с временным разрешением, было предсказано возможное замедление внутризонной релаксации при увеличении интенсивности возбуждения, вызванное двумя основными причинами:

1. заполнением фононных мод, в первую очередь тех, чьи волновые вектора соответствуют максимуму скорости испускания фононов электронами и дырками;

¹ Днепровский, В.С. Перестройка спектров излучения электронно-дырочной плазмы CdSe при сильном замедлении внутризонной релаксации / В. С. Днепровский, В. И. Климов, М. Г. Новиков // Письма в ЖЭТФ. – 1990. – Т. 52. – №. 10. – С. 1130-1134.

2. экранированием электрон(дырочно)-фононного взаимодействия, приводящим к росту продольной диэлектрической проницаемости электронно-дырочной плазмы.

Охлаждение носителей начинает происходить с временами, характерными для процесса распада продольных оптических (LO) фононов на акустические фононы.

В кристалле CdS впервые была проведена оценка времени декогеренции для газа фотовозбужденных носителей ($T_2=360\pm35$ фс) путем проведения экспериментов с временным разрешением в схеме вырожденного ЧВС и экспериментально продемонстрирован факт возбуждения когерентных оптических фононов, выражающийся в появлении дополнительной полосы в оптическом спектре отклика ЧВС со сдвигом в область меньших частот, соответствующим энергии LO-фонона 37,5 мЭв (рисунок 5). Существенный разброс времен релаксации фотовозбужденных носителей в опубликованной литературе связан, по-видимому, с влиянием процессов с участием дефектных уровней в области времен, значительно превышающих сотни пикосекунд, а также с проявлением быстрой компоненты в спаде сигнала в схеме «возбуждение-зондирование», обязанной процессу охлаждения горячих носителей в области единиц пикосекунд.

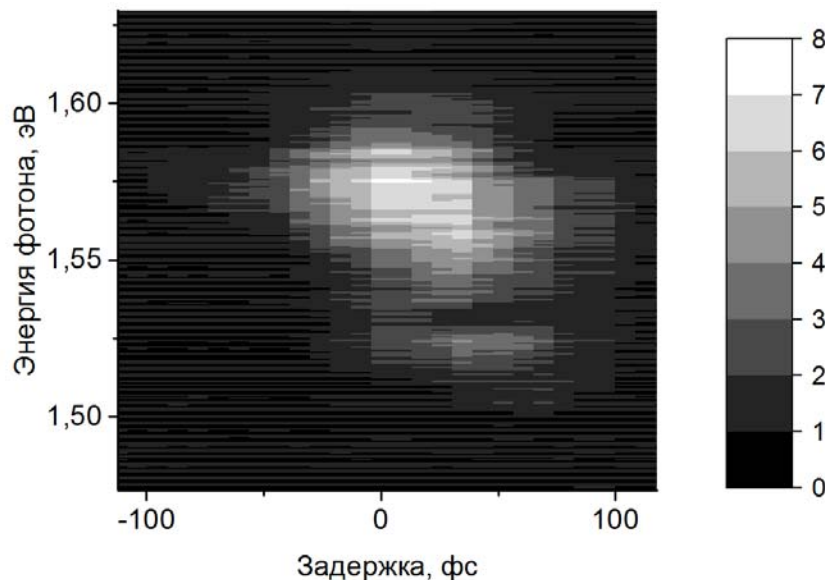


Рисунок 5. Изменение сигнала ЧВС с разрешением по спектру излучения при варьировании задержки между импульсами возбуждения

В заключении к главе 4 сделан вывод о перспективности использования монокристалла CdS в системах оптической обработки информации. Приводятся

параметры потенциального оптического переключателя на его основе: ультракороткое время включения <400 фс, и время восстановления 230 пс, что наряду с относительно высоким значением нелинейнооптической восприимчивости третьего порядка (в объемном кристалле $n_2 \sim 5 \times 10^{-4} \text{ см}^2/\text{ГВт}$, в нанокompозитах на основе CdS n_2 может достигать $1 \times 10^{-2} \text{ см}^2/\text{ГВт}$), свидетельствует о применимости этого материала в устройствах оптоэлектроники и оптической обработки информации с рабочими частотами до 1 ГГц. Исключить влияние длинных времен жизни ловушек на оптические свойства переключающего элемента возможно путем отстройки длины волны модулируемого излучения от полосы поглощения ловушек в область $\lambda > 1$ мкм или выбором в качестве рабочей среды наноструктурированного материала с управляемой шириной запрещенной зоны, например, нанокристаллов CdS(CdSe) в полимерной матрице.

Превышение интенсивности возбуждающего излучения значения в $100 \text{ ГВт}/\text{см}^2$, сопровождающееся насыщением наведенного изменения показателя преломления, с одной стороны, приводит к снижению контраста между открытым и закрытым состояниями оптического затвора на основе CdS. Однако с другой стороны, превышение порогового значения интенсивности сопровождается изменением характерного времени релаксации с сотен до единиц пикосекунд. Таким образом, появляется возможность управлять временем переключения затвора, варьируя интенсивность управляющего излучения. Существование порога населенности свободных носителей указывает на возможность использования подобных материалов в качестве насыщающегося поглотителя с пикосекундным временем релаксации. Наличие выраженной субпикосекундной компоненты эмиссии вынужденной излучательной рекомбинации может быть использовано при создании устройства преобразования длины волны ультракоротких импульсов.

В заключении приводятся основные **результаты** работы:

- создана экспериментальная установка, позволяющая измерять времена сверхбыстрой релаксации возбуждений методами «возбуждение-зондирование», ап-конверсии и четырехволнового смешения в конденсированных средах;
- установлены значения времен жизни возбужденного состояния S_1 и времен фазовой релаксации фталоцианина в полимерной матрице при комнатной температуре;

- проведена экспериментальная демонстрация операции побитового умножения в полимерной пленке, допированной фталоцианином, в режиме вырожденного четырехволнового смешения при комнатной температуре;
- установлены значения времени жизни свободных носителей и характерного времени захвата носителей глубокими ловушками в кристалле CdS при комнатной температуре;
- проведена оценка длительности эмиссии, сопровождающей процесс вынужденной излучательной рекомбинации в кристалле CdS, при комнатной температуре;
- зарегистрировано появление быстрой составляющей с характерным временем около 4 пс в сигнале распада наведенной решетки в кристалле CdS при комнатной температуре при превышении интенсивности излучения возбуждения значения в 100 ГВт/см^2 .

а также сформулированы **выводы**

- Криогенные температуры не являются необходимым условием для построения полностью оптического вычислительного устройства на основе явления четырехволнового смешения. В качестве рабочей среды таких устройств, работающих при комнатной температуре, могут быть использованы такие недорогие и технологичные материалы как хромофорные полимерные пленки;
- Кристаллический сульфид кадмия, обладающий коротким характерным временем рекомбинации ($230 \pm 6 \text{ пс}$) и сверхкоротким временем излучательной рекомбинации носителей заряда ($< 1 \text{ пс}$), может быть использован в качестве рабочей среды оптически управляемых затворов, насыщающихся поглотителей и сверхбыстрых преобразователей частоты света.

Публикации автора по теме диссертации

Статьи в ведущих научных журналах, входящих в перечень ВАК:

- A1. Леонтьев, А. В. Двухканальный режим исследования сигналов фемтосекундного фотонного эха в полимерных пленках, допированных красителем, при комнатной температуре / А.В. Леонтьев, В.С. Лобков, К.М. Салихов, В.В. Самарцев, Г.М. Сафиуллин, В.В. Зуйков // Уч. Зап. Казанского университета. Серия Физ.-мат. науки. – 2007. – Т. 149. – №. 1.

- A2. Lobkov, V. S. Femtosecond primary and stimulated photon echoes in a dye-doped polymer film at room temperature / V. S. Lobkov, A. V. Leontiev, K. M. Salikhov, V. V. Samartsev, G. M. Safiullin, A. Y. Vorobyev, V. A. Zuikov // Laser physics. – 2007. – Vol. 17. – №. 4. – P. 332-338.
- A3. Ivanin, K. V. Femtosecond four-wave mixing spectroscopy on CdS crystal at room temperature / K. V. Ivanin, A. V. Leontyev, V. S. Lobkov, V. G. Nikiforov, K. M. Salikhov, V. V. Samartsev, G. M. Safiullin // Laser Physics Letters. – 2009. – Vol. 6. – №. 9. – P. 644-646.
- A4. Safiullin, G. M. Femtosecond echo-processing in a dye-doped polymer film at room temperature / G. M. Safiullin, V. G. Nikiforov, V. S. Lobkov, V. V. Samartsev, A. V. Leontiev // Laser Physics Letters. – 2009. – Vol. 6. – №. 10. – P. 746-752.
- A5. Сафиуллин, Г. М. Реализация фемтосекундного эхо-процессинга при комнатной температуре / Г.М. Сафиуллин, В.Г. Никифоров, В.С. Лобков, В.В. Самарцев, А.В. Леонтьев // Известия Российской академии наук. Серия физическая. – 2010. – Т. 74. – №. 7. – С. 969-971.
- A6. Leontiev, A. V. «Entangled» free-induction decay in CdS crystal under two-photon excitation by two crossed laser beams / A. V. Leontiev, V. S. Lobkov, T. G. Mitrofanova, A. G. Shmelyov, V. V. Samartsev // Laser Physics Letters. – 2012. – Vol. 9. – №. 9. – P. 654.
- A7. Леонтьев, А.В. Термализация “горячих” носителей и динамика населенности уровня ловушек в кристалле CdS с фемтосекундным временным разрешением / А.В. Леонтьев, К.В. Иванин, В.С. Лобков, В.В. Самарцев, Г.М. Сафиуллин // Уч. Зап. Казанского университета. Серия Физ.-мат. науки. – 2013. – Т. 155. – №. 1.
- A8. Shmelev, A.G. Ultrafast Below-Band-Gap Laser Pulse Induced Relaxations In CdS Crystal / A.G. Shmelev, A.V. Leontyev, V.G. Nikiforov, K.V. Ivanin, V.S. Lobkov, V.V. Samartsev, O.Kh. Khasanov // Journal of Physics: Conference Series. – 2015. – Vol. 613. – № 1. – P. 012014.

Тезисы конференций и симпозиумов:

- A9. Леонтьев А.В., Исследование кристалла CdS методами четырехволнового смешения / А.В. Леонтьев, К.В. Иванин, В.С. Лобков, К.М. Салихов, В.В. Самарцев, Г.М. Сафиуллин / Труды международной конференции “Оптика-2009”. Санкт-Петербург, 19-23 октября 2009. - Санкт-Петербург, 2009. – С. 191-193.

- A10. Ivanin, K.V. Femtosecond photon echo and four-wave mixing in a dye-doped polymer film, semiconductors and heterostructures at room temperature / K.V. Ivanin, A.V. Leontyev, V.S. Lobkov, K.M. Salikhov, G.M. Safiullin // Conference Program of ICONO/LAT - 2010. – Kazan, Russia, 23-26 August 2010. – Kazan, 2010. – P.41
- A11. Leontyev, A.V. Ultrafast below-band-gap laser pulse induced relaxations in CdS crystal / A.V.Leontyev, K.V.Ivanin, V.S.Lobkov // Conference Program of ICONO/LAT - 2013. – Moscow, Russia, 18-22 June 2013. – Moscow, 2013. – P.69
- A12. Леонтьев А.В. Сверхбыстрая вырожденная спектроскопия полупроводниковых наноструктур CdSe/CdS А.В. Леонтьев, Д.К. Жарков, А.Г. Шмелев, В.Г. Никифоров, В.С. Лобков // Сборник статей XIX Международной молодежной научной школы «Когерентная оптика и оптическая спектроскопия» – Казань: Казан.ун-т, 2015. - С. 146-149.